

FUEL CELL SYSTEM, TRANSFORMING METHOD FOR CARBON MONOXIDE GAS IN THIS SYSTEM AND THE SAME METHOD IN MIXED GAS**Publication Number:** 2000-340247 (JP 2000340247 A) , December 08, 2000**Inventors:**

- NAKANISHI HARUMICHI

Applicants

- DAIHATSU MOTOR CO LTD

Application Number: 11-151776 (JP 99151776) , May 31, 1999**International Class:**

- H01M-008/06
- B01J-035/02
- C01B-003/32
- H01M-008/02
- H01M-008/04
- H01M-008/10
- C01B-031/20

Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a technology for transforming carbon monoxide gas to carbon dioxide gas with a small amount of energy, especially in a fuel cell system using hydrogen produced by reforming a hydrogen containing compound, and a technology for properly transforming carbon monoxide by-produced when reforming the hydrogen containing compound. **SOLUTION:** This fuel cell system 1 is constituted so that a hydrogen rich fuel gas produced by reforming a hydrogen containing compound by a reformer 2 is supplied to a fuel cell (stack 4) after transforming carbon monoxide gas in the fuel gas to carbon dioxide. This is a method for transforming carbon monoxide gas to carbon dioxide gas in the system 1, the carbon monoxide gas is contacted with a photocatalyst in ultraviolet to be converted in the converting device 3. Preferably, titanium oxide is used as a photocatalyst, and the wavelength of ultraviolet for irradiating the titanium oxide is in a range of 200 nm or less, especially 100 to 150 nm. **COPYRIGHT:** (C)2000,JPO

JAPIO

© 2005 Japan Patent Information Organization. All rights reserved.
Dialog® File Number 347 Accession Number 6754382

THIS PAGE BLANK (USPTO)

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2000-340247
(P2000-340247A)

(43)公開日 平成12年12月8日(2000.12.8)

| (51)Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | マークコード ⁸ (参考) |
|--------------------------|-------|---------|--------------------------|
| H 0 1 M | 8/06 | H 0 1 M | G 4 G 0 4 0 |
| B 0 1 J | 35/02 | B 0 1 J | J 4 G 0 4 6 |
| C 0 1 B | 3/32 | C 0 1 B | A 4 G 0 6 9 |
| H 0 1 M | 8/02 | H 0 1 M | E 5 H 0 2 6 |
| | 8/04 | | K 5 H 0 2 7 |

審査請求 未請求 請求項の数 8 OL (全 13 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平11-151776

(22)出願日 平成11年5月31日(1999.5.31)

(71) 出願人 000002967

ダイハツ工業株式会社

大阪府池田市ダイハツ町1番1号

(72) 発明者 中西 治通

大阪府池田市桃園2丁目1番1号 ダイハツ工業株式会社内

(74) 代理人 100086380

并理士 吉田 稔 (外2名)

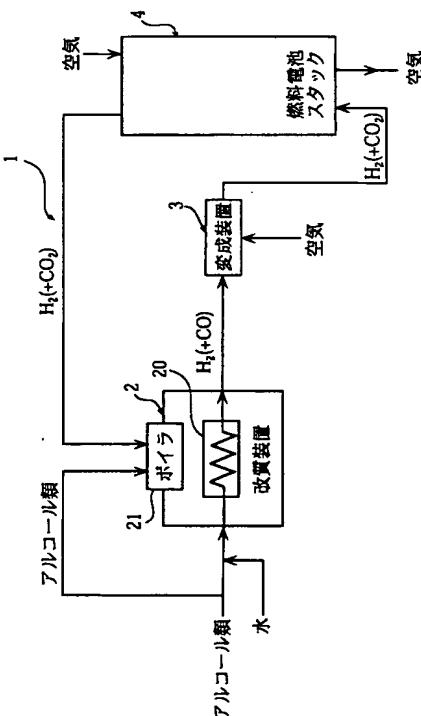
F ターム(参考) 4G040 DA01 DB04 DB05 DC07
4G046 JA05 JB01 JB06 JB12 JB21
4G069 AA15 BA04A BA04B BA48A
CC32 FB79
5H026 AA06 CC03 CC08
5H027 AA06 BA09 BA17

(54) 【発明の名称】 燃料電池システム、この燃料電池システムでの一酸化炭素ガスの変成方法および混合ガス中における一酸化炭素ガスの変成方法

(57) 【要約】

【課題】 小さなエネルギーにより一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する技術、とくに水素含有化合物を改質して得られる水素ガスを利用する燃料電池システムにおいて、水素含有化合物の改質の際に副生する一酸化炭素ガスの適切に変成できる技術を提供する。

【解決手段】 水素含有化合物を改質装置2において改質して得られる水素リッチな燃料ガスを、当該燃料ガス中の一酸化炭素ガスを変成装置3において二酸化炭素ガスに変成した後に燃料電池40（スタック4）に供給するように構成された燃料電池システム1において、一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する方法であって、変成装置3において、一酸化炭素ガスを、紫外線照射下の光触媒と接触させて変成する。好ましくは、光触媒として酸化チタンを用い、この酸化チタンに照射する紫外線の波長範囲を200nm以下、とくに100～150nmとする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 水素含有化合物を改質して水素リッチな燃料ガスを得る改質装置と、燃料ガス中に含まれる一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する変成装置と、変成処理された燃料ガスと酸素含有ガスとの反応により起電力を生じる燃料電池と、を備えた燃料電池システムであつて、

上記変成装置は、光照射手段と、この光照射手段による光照射下において、一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する触媒活性を示す光触媒と、を有することを特徴とする、燃料電池システム。

【請求項2】 上記燃料電池は、水素ガス用の流路としての第1溝部が表面に設けられた第1のプレートと、酸素ガス用の流路としての第2溝部が表面に設けられ、かつ当該第2溝部が上記第1溝部と対向するようにして配置される第2のプレートと、上記第1のプレートと上記第2のプレートとの間に介在するイオン交換膜と、を備え、かつ、

上記第1のプレートと上記イオン交換膜との間には、水素ガスを水素イオンと電子に解離する負極触媒部、およびこのときに生じた電子を集めるための負極集電体が配置され、

上記第2のプレートと上記イオン交換膜との間には、酸素ガスを水素イオンおよび電子と反応させる正極触媒部、およびこの正極触媒部に電子を供給する正極集電体が配置されている、請求項1に記載の燃料電池システム。

【請求項3】 上記負極集電体および上記正極集電体の周囲を囲むようにして配置された第1ガスケットおよび第2ガスケットをさらに備えるとともに、上記負極集電体と上記第1ガスケットとの間の領域に、または上記正極集電体と上記第2ガスケットとの間の領域には、吸水性高分子ゲルが充填されている、請求項2に記載の燃料電池システム。

【請求項4】 上記負極集電体と上記負極触媒部との間、または上記負極触媒部と上記イオン交換膜との間には、水素ガスを加湿し、あるいは上記負極触媒部において水素ガスから解離された水素イオンを水和するための給水層が設けられている、請求項2に記載の燃料電池システム。

【請求項5】 上記給水層は、一対の透湿性防水シートの間に吸水材を介在させた構成とされている、請求項4に記載の燃料電池システム。

【請求項6】 水素含有化合物を改質して得られる水素リッチな燃料ガスを、当該燃料ガス中に含まれる一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成した後に燃料電池に供給するように構成された燃料電池システムにおいて、一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する方法であつて、

一酸化炭素ガスを、光照射下において活性化された光触

媒と接触させて変成することを特徴とする、燃料電池システムにおける一酸化炭素の変成方法。

【請求項7】 上記光触媒は酸化チタンであり、この酸化チタンに照射される光の波長範囲は200nm以下である、請求項6に記載の燃料電池システム。

【請求項8】 一酸化炭素ガスを含む混合ガスを、200nm以下の波長範囲にある紫外線の照射下で酸化チタンと接触させることにより、混合ガス中の一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成することを特徴とする、混合ガス中における一酸化炭素ガスの変成方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、水素含有化合物から得られる水素リッチガスを、この水素リッチガス中の一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成した後に燃料電池に供給するように構成された燃料電池システム、この燃料電池システムでの一酸化炭素ガスの変成方法、および混合ガス中における一酸化炭素ガスの変成方法に関する。

【0002】

【従来の技術およびその課題】 燃料電池は、負極活物質としての水素を、プラチナ（白金）などの触媒と接触させて電子とプロトンに解離した後、このプロトンを正極活物質としての酸素と反応させて水が得られるという反応機構に基づいている。すなわち、燃料電池では、負極側において水素から放出された電子の移動により起電力が生じるようになされている。

【0003】 このような原理に基づけば、化学的エネルギー変化を直接的に電気エネルギーに変換できるため、他の発電方式に比べて極めてエネルギー効率が高い。このことは、カルノーサイクルに基づく内燃機関に比べて燃料電池はエネルギーロスがなく、内燃機関の代替手段である電気自動車用のモータのバッテリとしても有用であることを意味している。そして、燃料電池では、排気ガスが主として水蒸気であり、内燃機関のように窒素化合物、炭化水素、一酸化炭素といった有害ガスが排出されることもないため、環境保護の観点からも燃料電池をバッテリとした電気自動車の実用化が望まれている。

【0004】 ところで、燃料電池へ水素を供給する場合、水素源としては種々のものが考えられる。たとえば、高圧でボンベ内に充填された水素ガス、あるいは液化した状態でボンベに充填された液化水素、水素吸蔵合金に吸蔵された水素ガスなどの他、メタノールやガソリンなどの水素含有化合物を改質して得られる水素ガスを水素源として使用することもできる。

【0005】 しかしながら、ガス状または液状化された水素をボンベに充填し、これを水素源とする方法では、何らかの原因でボンベの水素に引火した場合の安全性の面で問題があり、とくに電気自動車に水素ボンベを搭載することは問題である。このため、このような問題を解

決するための手段を別途講じる必要があり、コスト的な面でも不利である。水素吸蔵合金を用いる方法では、水素を充填したボンベを用いる方法よりは安全であるが、コスト的な面で問題がある。そればかりか、水素吸蔵合金での最大水素吸蔵量は、合金の全体重量に対して数%と小さい上に、水素吸蔵合金自体の比重が大きいため、燃料電池を含むシステム自体の軽量化、ひいては電気自動車の軽量化を図るのが困難となる。したがって、安全性や軽量化の他、水素スタッドなどのインフラの観点からは、水素含有化合物の改質して水素ガスを取り出す方法が好ましい。

【0006】水素含有化合物を改質して水素を得る方法としては、メタノールに水蒸気を接触させる方法やメタノールの一部を酸化する方法（部分酸化（燃焼）法）が一般的であるが、これらの方法では、微量の一酸化炭素ガスを含む混合ガスとして水素ガスが得られる。通常、燃料電池の負極において水素から電子を放出させてプロトンに解離する場合には、上記したように触媒としてプラチナ（Pt）が好適に使用される。ところが、プラチナは一酸化炭素ガスにより被毒されて活性が徐々に低くなるという問題があるため、一酸化炭素ガスを含んだ混合ガスを燃料電池に供給することは、プラチナの触媒寿命を縮めることとなってしまう。

【0007】このため、プラチナの被毒を防止する目的で、触媒の存在下で混合ガスを160℃程度に加熱して一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成処理した後に、処理後の混合ガスを燃料電池に供給する方法が講じられている。この方法では、改質して得られた混合ガスを、燃料電池に供給する前に加熱する必要があることから、燃料電池を含めたシステム全体のエネルギー効率が悪くなってしまう。これでは、エネルギー効率が高いという燃料電池の特質が生かしきれない。また、混合ガス（変成装置内）が160℃程度に加熱されるまでは一酸化炭素が十分に二酸化炭素に変成されないことから、システムの立ち上げ時などのように十分に変成装置内が加熱されていない状態では、比較的に多量の一酸化炭素がプラチナと接触し、これによりプラチナが被毒されてしまう。したがって、加熱による酸化方法では、自動車のバッテリのように、システムの立ち上げ、立ち下げが繰り返し行われる状況下において、プラチナの被毒を十分に抑制することはできない。

【0008】本発明は、上記した事情のもとで考え出されたものであって、小さなエネルギーにより一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する技術、とくに水素含有化合物を改質して得られる水素ガスを利用する燃料電池システムにおいて、水素含有化合物の改質の際に副生する一酸化炭素ガスを適切に変成できる技術を提供することをその課題としている。

【0009】

【発明の開示】上記の課題を解決するため、本発明で

は、次の技術的手段を講じている。

【0010】すなわち、本発明の第1の側面により提供される燃料電池システムは、水素含有化合物を改質して水素リッチな燃料ガスを得る改質装置と、燃料ガス中に含まれる一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する変成装置と、変成処理された燃料ガスと酸素含有ガスとの反応により起電力を生じる燃料電池と、を備えた燃料電池システムであって、上記変成装置は、光照射手段と、この光照射手段による光照射下において、一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する触媒活性を示す光触媒と、を有することを特徴としている。

【0011】水素含有化合物としては、有機化合物および無機化合物のいずれをも好適に採用することができるが、システム全体のエネルギー効率を考慮した場合、比較的に小さなエネルギー（低温）で改質できる化合物を採用するのが好ましい。

【0012】有機化合物としては、炭化水素の他、炭化水素を主成分とする天然ガスや石油、あるいは炭化水素を母体とし、水素原子の一部を酸素官能基で置換した誘導体、窒素官能基で置換した誘導体、あるいは硫黄官能基で置換した誘導体などが挙げられる。酸素官能基で置換した誘導体としては、アルコール、フェノール、アルデヒド、カルボン酸、ケトン、エーテルなどが挙げられ、窒素官能基で置換した誘導体としては、ニトロ化合物やアミンなどが挙げられ、硫黄官能基により置換した誘導体としては、チオールやスルホン酸などが挙げられる。一方、無機化合物としては、炭酸、アンモニアやヒドラジンなどが挙げられる。

【0013】改質装置における水素含有化合物の改質には、水素含有化合物を水蒸気に接触させて一酸化炭素と水素に変化させる水蒸気改質法や、水素含有化合物の一部を燃焼させて一酸化炭素と水素とを得る部分酸化（部分燃焼）法などが好適に採用される。水蒸気改質法を採用する場合には、通常、改質装置は、耐熱金属製の反応管内にCu-Zn触媒やNi系触媒などを充填した構成とされ、前者の触媒を採用する場合には250～300℃程度に、後者の触媒を採用する場合には800～900℃程度に加熱した状態で水素含有化合物の改質が行われる。

【0014】変成装置は、上記したように少なくとも光照射手段と光触媒とを有しており、これらが適宜の変成反応器内に収容された構成とされる。

【0015】光照射手段としては、使用される光触媒が高い活性を示す波長範囲の光を照射できるものであればよく、光触媒の種類に応じて、ブラックライトなどの紫外線ランプ、ナトリウムランプ、水銀ランプ、キセノンランプ、白熱灯（タンクスステンランプ）、冷陰極管、白色蛍光灯などの他、適宜の光源からフィルターなどを介して所定波長の光を取り出すように構成された光源装置であってもよい。

【0016】光触媒としては、たとえば酸化チタン、酸化亜鉛、酸化タンクス滕、酸化バナジウムや酸化ジルコニウムなどが挙げられる。これらの光触媒のうち、酸化力の強さ、安定性およびコスト的な面などを考慮すれば、酸化チタンが最も好適に採用される。

【0017】これらの触媒は、通常、適宜の担体に担持させた状態で変成反応器内に収容される。担体としては、たとえば金属製のメッシュ（金網など）、コーチェライト製または金属製のハニカム担体、金属板、セラミック板や樹脂板などが挙げられる。担体に光触媒を担持させる方法としては、たとえばゾル・ゲル法やバインダ法が挙げられる。

【0018】ゾル・ゲル法は、光触媒の前駆体を含む液体原料（ゾル）を担体表面に塗布した後にこれを乾燥させてゲル状とし、さらに500℃以上で焼成する方法である。液体原料としては、たとえばチタニウムアルコキシドやチタニウムキレートなどの有機系チタン溶液が挙げられる。

【0019】バインダ法は、たとえば光触媒をバインダ樹脂と混練した後に、これを担体表面にコーティングした後に、バインダ樹脂を固化ないし硬化させる方法である。バインダ樹脂としては、シリカや水ガラスなどの無機系、あるいはシロキサン結合を持つシリコーンなどの有機系のものが挙げられる。また、バインダとして機能するアモルファス型過酸化チタン（ TiO_3 ）を担体に接着した後に、過酸化チタンを200℃以上に加熱して酸化チタンの光触媒層に相変化させる方法を採用してもよい。

【0020】さらに、担体に光触媒を担持させる別 の方法としては、有機溶媒などによって光触媒の粉末をスラリー状とし、このスラリーを担体に付着させた後に、熱処理によって有機溶媒を蒸発させて担持させたり、さらに熱処理を行って光触媒を焼結させる方法が挙げられる。

【0021】また、チタン原料を含む溶液を利用して、適宜の担体に光触媒を固定化するようにしてもよい。チタン原料を含む溶液としては、たとえばチタニウムアルコキシド（エトキシドやプロポキシドなど）、チタニウムキレート、四塩化チタン、硝酸チタニル、あるいは硫酸チタニルなどを有機溶媒や水に溶解させたものが挙げられる。

【0022】もちろん、金属チタンやチタン合金などの表面を酸化して二酸化チタンなどの光触媒層を形成してもよい。

【0023】燃料電池は、通常の電池と同様に正極、負極および電解質を有しているとともに、その電解質の種類により、アルカリ型、固体高分子型、リン酸型、溶融炭酸塩型および固体酸化物型などに大別できるが、本発明ではいずれの形態の燃料電池をも好適に採用することができる。

【0024】とくに、本発明においては、電解質として固体高分子が採用された固体高分子型の燃料電池が好適に採用され、その構成を例示すれば以下の通りである。すなわち、燃料電池としては、水素ガス用の流路としての第1溝部が表面に設けられた第1のプレートと、酸素ガス用の流路としての第2溝部が表面に設けられ、かつ当該第2溝部が第1溝部と対向するようにして配置される第2のプレートと、第1のプレートと第2のプレートとの間に介在するイオン交換膜と、を備え、かつ、第1のプレートとオン交換膜との間に、水素ガスを水素イオンと電子に解離する負極触媒部、およびこのときに生じた電子を集めるための負極集電体が配置され、第2のプレートと上記イオン交換膜との間に、酸素ガスを水素イオンおよび電子と反応させる正極触媒部、およびこの正極触媒部に電子を供給する正極集電体が配置された構成のものが好適に採用される。

【0025】第1のプレートおよび第2のプレートは、これらのプレートの間に電池として機能する領域を規定し、また確保するために設けられるばかりか、水素ガスや酸素ガスを供給する際に利用されるものであるから、耐熱性に優れ、機械的強度の高い材料、たとえば各種の金属や合金（チタン、ステンレス鋼やチタン合金など）によって形成される。

【0026】イオン交換膜は、水素イオンを選択的に通過させるものであり、具体的には、ポリスチレン系の陽イオン交換膜、たとえばペルフルオロスルホン酸ポリマーが好適に使用される。このポリマーは、水により潤滑した場合にプロトン導電性を示すものであり、負極触媒部において水素ガスの解離により生じたプロトン（水素イオン）は水和した状態で透過し、正極触媒部に移動するようになされている。なお、イオン交換膜の厚みは、たとえば0.13～0.25mm程度に設定される。

【0027】負極触媒部は、供給された水素ガスを電子とプロトン（水素イオン）に解離する機能を有し、正極触媒部は、電子、プロトン（水素イオン）および酸素ガスを反応させて水を生成する機能を有している。

【0028】負極触媒部および正極触媒部は、たとえば多孔質担体に触媒粉末を担持させたものとして構成してもよく、またイオン交換膜の表面に直接的に形成してもよい。後者の場合、たとえば触媒粉末を担持した担体としての炭素粉末を有機溶剤によりペースト状とし、あるいは触媒と炭素粉末との混合物を有機溶剤によりペースト状としたものをスクリーン印刷などの手法によりイオン交換膜上に塗布し、溶剤成分を蒸発させることによって形成される。また、フッ素樹脂製などの撥水シート上に、スクリーン印刷・乾燥などの手法により触媒層を形成した後に、これをイオン交換膜上に熱転写して各触媒部としてもよい。

【0029】なお、負極触媒部では、水素ガスを水素イオンと電子に解離する必要があることから、当該触媒部

を構成する触媒としては、たとえば白金、金、ニッケル、炭化タングステンなどが採用される。一方、正極触媒部では、酸素ガスを水素イオンや電子と反応させて必要があることから、当該触媒部を構成する触媒としては、たとえば白金、金、銀、ロジウムなどが採用される。

【0030】負極集電体は、水素ガスを通過させてこれを負極触媒部まで達するようし、また負極触媒部において生じた電子を集めめる機能を有する。一方、正極集電体は、酸素ガスを通過させてこれを正極触媒部にまで達するようにし、また正極触媒部に電子を供給する機能を有する。このため、負極集電体および正極集電体は、適当な多孔度を持ち、かつ良好な電子導電体であることが要求される。もちろん、機械的強度に優れ、電解質に侵されにくいことも要求される。このような要求を充足する集電体の構成材料としては、炭素系素材（カーボンブラックなどの炭素粉末、黒鉛、炭素繊維など）、ニッケル、ニッケルーコロム合金、ニッケルーコバルト合金、銀、チタン、タンタル、酸化物半導体などが挙げられる。なお、電解質として固体高分子であるイオン交換膜を用いる場合には、炭素系素材が好適に採用される。

【0031】第1ガスケットおよび第2ガスケットは、イオン交換膜と各プレートとの間の封止状態、ひいては各プレート間の封止状態を確実ならしめるために使用されるものであり、たとえば薄状に加工された絶縁性を有するゴムなどが採用される。なお、各ガスケットの厚みは、各集電体の厚みと同程度もしくはそれよりも若干厚めに形成される。

【0032】なお、燃料電池システムにおける燃料電池の個数は、燃料電池システムに求められる発電能力に応じて決定すればよく、たとえば複数の燃料電池を直列的に積層して燃料電池スタックとし、これを燃料電池システムに組み込んでよい。燃料電池を直列的に積層する場合には、隣り合う燃料電池どうしで同一のプレートを共用してもよい。この場合、共用するプレートの一面側には水素ガスの流路としての第1溝部が設けられ、他面側には酸素ガスの流路としての第2溝部がそれぞれ設けられる。また、各プレートの各々の第1溝部どうし、および第2溝部どうしをそれぞれ連通させ、一カ所から水素ガスを供給すれば各プレートの全ての第1溝部に水素ガスが流通し、同様に、一カ所から酸素ガスを供給すれば各プレートの全ての第2溝部に酸素ガスが流通するように構成してもよい。さらに、共用するプレートを、導体により構成するとともに、一方の燃料電池の正極集電体および他方の燃料電池の負極集電体の双方に導通するように構成してもよい。この構成では、他方の燃料電池の負極集電体に集められた電子が、共用するプレートを介して一方の燃料電池の正極集電体に供給され、この電子が一方の燃料電池の正極触媒部における水の生成反応に寄与することとなる。

【0033】好ましい実施の形態においてはさらに、上記負極集電体および上記正極集電体の周囲を囲むようにして配置された第1ガスケットおよび第2ガスケットをさらに備えるとともに、上記負極集電体と上記第1ガスケットとの間の領域に、または上記正極集電体と上記第2ガスケットとの間の領域には、吸水性高分子ゲルが充填されている。

【0034】先にも述べた通り、正極触媒部においては、酸素ガスが、水素イオンや電子と反応して水を生成するが、この水の一部は、イオン交換膜において吸収され、また各プレートの第1溝部や第2溝部、とくに第2のプレートの第2溝部に溜まってしまう。イオン交換膜において水が吸収された場合には、イオン交換膜が膨張するが、このとき、イオン交換膜に隣接した領域に隙間があれば、この隙間に膨張したイオン交換膜の一部が入り込んでしまう。上記した構成の燃料電池では、集電体の周りを囲むようにしてガスケットが配置されているが、この構成では集電体の周りにおける当該集電体とガスケットとの間の領域に生じた隙間を完全に無くすることは難しく、この隙間に膨張したイオン交換膜が入り込んでしまう。そして、イオン交換膜における水分量は一定でないため、水分量の変化によってイオン交換膜の膨張・収縮が繰り返されることとなり、膨張時において上記した隙間に入り込んでしまうイオン交換膜の特定部分は、波打ったような、しづかよったような状態となって強度が低下し、その部位からの破損が通常ひんぱんに起こり大きな問題である。方、各プレートの溝部に水が溜まった場合には、水素ガスや酸素ガスの流通の妨げとなり、燃料電池において所望通りに起電力を生じさせることができなくなる。

【0035】このような問題に対して本発明では、集電体の周りにおける当該集電体とガスケットとの間の領域に吸水性高分子ゲルを充填する構成を採用している。この構成では、イオン交換膜が膨張する状態においては吸水性高分子ゲルも同時に膨張し、吸水性高分子ゲルによって上記した隙間が埋められてしまう。このため、イオン交換膜が膨張したとしても、上記した隙間にイオン交換膜の特定部分が入り込んでしまうこともないため、たとえイオン交換膜の膨張・収縮が繰り返されたとしても、イオン交換膜の強度がさほど低下することもない。また、反応により生じた水は、イオン交換膜ばかりでなく、吸水性高分子ゲルにおいても吸収されるため、各プレートの溝部に水が溜まってしまうことが、ある程度は回避される。

【0036】なお、吸水性高分子ゲルとしては、ポリアクリル酸ナトリウム架橋体などが挙げられる。

【0037】好ましい実施の形態においてはまた、負極集電体と負極触媒部との間、または負極触媒部とイオン交換膜との間には、負極触媒部に供給される水素ガスを加湿し、あるいは上記負極触媒部において水素ガスから

解離した水素イオンを水和するための給水層が設けられている。

【0038】上記構成によれば、イオン交換膜に達した水素イオンは給水層の水分によって水和されている。イオン交換膜内を水素イオンが移動する際は、ヒドロニウムイオン (H_3O^+) の形態となっていることが必要であるため、イオン交換膜に達した時点で水和されれば、イオン交換膜の潤滑状態に関係なく、水素イオンは確実にイオン交換膜を透過することができる。そして、正極触媒部に達して電子や酸素ガスと反応して水を生成する。正極触媒部において生成された水は、本来不要なものであるばかりか、各プレートの第1溝部や第2溝部に溜まって、水素ガスや酸素ガスの流通を妨げるものであるのは上述した通りである。ところが、給水層の水分が消費されれば、その不足分として、正極触媒部において生成した水を利用することができる。つまり、イオン交換膜を介して給水層に水分が供給されることとなり、正極触媒部において生成した水の一部が給水層に蓄えられ、これによりガス流通を妨げるといった不具合をある程度回避することができる。また、給水層の存在により水素イオンが水和されることから、燃料電池に供給される水素ガスを予め加湿しておく必要がない。すなわち、水素ガスを加湿するための加湿器を別途設ける必要がなく、燃料電池システムの小型に貢献するばかりか、コスト低減も図ることができる。

【0039】ここで、給水層としては、たとえば一対の透湿性防水シートの間に吸水材を介在させた構成が挙げられるが、水素イオンを適切に水和（たとえば1水和物）させるとともに、反応により生じた水を給水層に供給（拡散）できるようにするためには、その厚みは、たとえば $10\mu m$ 以下とされる。また、この構成の給水層の概念には、透湿性防水シートによって袋（収容体）を形成し、この袋内に吸水材を収容した形態も含まれる。

【0040】なお、透湿性防水シートとしては、基布の一面または両面に、微多孔質の樹脂フィルムをラミネートしたり、あるいは微多孔質樹脂をコーティングしたものの他、高密度織物などが挙げられる。

【0041】上記基布としては、ポリエチレンやナイロンが好適に採用され、微多孔質の樹脂としては、たとえば四フッ化エチレン重合体などのフッ素系樹脂やポリウレタン系樹脂などが好適に採用される。

【0042】高密度織物は、1デニール以下の極細織維を用いて高密度に織り上げたもの、さらにそれに高収縮加工を施したものであり、糸と糸の間の隙間は $7\mu m$ 程度とされる。

【0043】また、吸水材としては、たとえば吸水性高分子ゲルとして例示したものと同様な高分子が好適に使用される。

【0044】本発明の第2の側面によれば、水素含有化合物を改質して得られる水素リッチな燃料ガスを、当該

燃料ガス中の一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成した後に燃料電池に供給するように構成された燃料電池システムにおいて、一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する方法であって、一酸化炭素ガスを、光照射により活性させた光触媒と接触させて変成することを特徴とする、燃料電池システムにおける一酸化炭素の変成方法が提供される。

【0045】先にも述べたように、水素含有化合物を改質して水素リッチな混合ガスを得、これを燃料電池に供給するように構成された燃料電池システムでは、改質の際に副生される一酸化炭素を変成する必要がある。そして、本発明では、従来のように加熱により一酸化炭素の変成を行うのではなく、光触媒を用いて一酸化炭素の変成を行うようになされている。すなわち、従来の変成方法のようにCu系の触媒などを用いて一酸化炭素を $160\sim300^\circ C$ 程度にまで加熱する必要はなく、紫外線などの光照射下で光触媒を常温で活性化させ、この状態の光触媒に一酸化炭素を接触させることにより変成が行われる。

【0046】光触媒への光の照射は、たとえば紫外線ランプなどの光源によって行われることから、一酸化炭素を連続的に $160^\circ C$ 程度にまで加熱する場合に比べれば、光源を継続的に点灯させて光触媒に光を照射し続けるほうが変成装置において消費されるエネルギーは格段に小さい。もちろん、光触媒は常温で活性化されるために光照射以外にエネルギーを供給する必要もない。このため、一酸化炭素の変成を光触媒を用いて行う燃料電池システムでは、加熱による変成方法を採用した従来の燃料電池システムに比べて、システム全体としてのエネルギーロスが少くなり、エネルギー効率が改善される。

【0047】また、光触媒を用いる方法では、光を照射（光源をオン）するだけで、一酸化炭素を変成することができる。すなわち、従来の変成方法のように、システムの立ち上げ時から混合ガス（変成装置内）が所定温度に達するまでの間において十分に一酸化炭素が変成されないといった事態は生じず、システムの立ち上げと同時に一酸化炭素の変成を確実に行うことができる。

【0048】ここで、光触媒としては、本発明の第1の側面において記載したのと同様なものを例示することができるが、とくに酸化チタンが好適に使用される。照射する紫外線の波長は、 200 nm 以下とするのが好ましく、とくに光触媒として酸化チタンを使用する場合には、 $100\sim200\text{ nm}$ の波長範囲、さらに好ましくは $100\sim150\text{ nm}$ の波長範囲の紫外線を照射するのが好ましい。

【0049】光触媒としての酸化チタンに対して、上記した波長範囲の紫外線を照射するのが好ましいのは、次の理由によるものである。すなわち、上記した波長範囲よりも小さい波長の紫外線を酸化チタンに照射した場合には、酸化チタンの酸化力（活性）があまりに大き過

ぎるために、一酸化炭素ガスばかりでなく、燃料電池において本質的に必要とされる水素ガスまでもが酸化されてしまうおそれがあるからである。一方、上記した波長範囲よりも大きな波長の紫外線を酸化チタンに照射した場合には、酸化チタンの酸化力（活性）が小さいために一酸化炭素ガスを十分に二酸化炭素に酸化（変成）できないからである。

【0050】このように、光触媒として酸化チタンを採用した場合には、酸化チタンに照射する紫外線の波長範囲を選択することによって、一酸化炭素を選択的に、しかも効率良く二酸化炭素に変成することができる。

【0051】もちろん、酸化チタンに所定波長の紫外線を照射した状態において一酸化炭素を変成するという技術思想は、燃料電池システムにおける一酸化炭素の変成方法ばかりでなく、一酸化炭素を含む混合ガスの中から一酸化炭素を選択的に変成する方法として広く一般的に適用することができる。

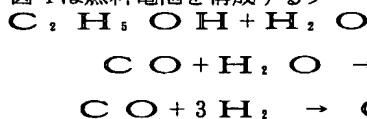
【0052】すなわち、本発明の第3の側面においては、一酸化炭素ガスを含む混合ガスを、200nm以下の波長範囲にある紫外線の照射下で酸化チタンと接触させることにより、混合ガス中の一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成することを特徴とする、混合ガス中における一酸化炭素ガスの変成方法が提供される。

【0053】好ましくは、光触媒に照射すべき紫外線の波長範囲は100～200nmとされ、さらに好ましくは100～150nmの波長範囲とされる。

【0054】本発明のその他の特徴および利点は、以下に行なう詳細な説明によって、より明らかとなろう。

【0055】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好ましい実施の形態を、図面を参照して具体的に説明する。なお、図1は燃料電池システムを表すブロック図、図2は燃料電池が直列的に集合した燃料電池スタックの全体斜視図、図3は燃料電池の分解斜視図、図4は燃料電池を構成するブ



【0060】すなわち、触媒の作用によりエタノールと水蒸気が反応して一酸化炭素と水素が生成する（反応式（1））。この反応が改質器20内での主反応である。この主反応により生じた一酸化炭素の大部分は、水蒸気と反応して二酸化炭素と水素となり（反応式（2））、また水素と反応してメタンと水となる（反応式（3））。つまり、改質装置2では、エタノールが水蒸気改質された結果、微量の一酸化炭素の他、メタンや二酸化炭素を含む水素リッチな燃料ガスが得られる。

【0061】変成装置3は、図面上には表されていないが、紫外線ランプと、紫外線照射下において酸化反応に対する高い触媒活性を示す触媒部と、を有している。紫

レートの対角線に沿って、当該燃料電池を断面したときの断面図である。また、本実施形態では、水素含有化合物としてたとえばアルコール類が用いられ、燃料電池の電解質として固体高分子が用いられた燃料電池システムについて説明する。

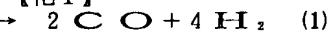
【0056】図1に示したように、燃料電池システム1は、メタノールやエタノールなどのアルコール類を改質して水素リッチな燃料ガスを得る改質装置2と、燃料ガスに含まれる一酸化炭素ガスを二酸化炭素ガスに変成する変成装置3と、水素ガスと酸素ガスとの反応により起電力を得る燃料電池40が直列的に集合した燃料電池スタック4と、を備えて大略構成されている。

【0057】改質装置2では、たとえば水蒸気改質法により、アルコール類が水素リッチな混合ガスとされる。具体的には、改質装置2は、アルコール類を改質するための触媒が充填された改質器20と、この改質器20内を、当該改質器20に供給されるアルコール類の改質に適した温度に加熱する加熱器21と、を有している。触媒としては、たとえばCu-Zn触媒やNi系触媒などが挙げられ、これらの触媒は、通常、金網やハニカム担体などに担持させた状態で改質器20内に充填されている。加熱器21としては、たとえばボイラが用いられ、この加熱器21では、Cu-Zn触媒を用いる場合には約250～300℃に、Ni系触媒を用いる場合には約800～900℃に改質器20内が加熱される。なお、加熱器21としてボイラが用いられる場合には、燃料電池スタック4において消費されなかった水素ガスや原料エタノールの一部がボイラ燃料として使用される。

【0058】このような構成とされた改質装置2内が加熱器21により所定温度にまで加熱され、たとえばアルコール類としてのエタノールと水蒸気とが所定のモル比で供給された場合には、以下に示す反応が起こる。

【0059】

【化1】



40 外線ランプとしては、少なくとも200nm以下、とくに100～150nmの波長範囲の紫外線を照射可能なものが好適に使用される。触媒部は、たとえば光触媒としての酸化チタンが金網などの担体に担持された構成とされている。

【0062】この変成装置3には、改質装置2において得られた微量の一酸化炭素を含む混合ガスが、空気とともに供給され、紫外線照射により活性化された光触媒の触媒作用により一酸化炭素ガスが二酸化炭素ガスに空気酸化（変成）される。このとき、光触媒に照射すべき紫外線の波長を上記した波長範囲に設定すれば、水素ガスをほとんど酸化することなく、一酸化炭素ガスを選択的

に変成（酸化）することができる（この点については、後に説明する実施例において裏付けられる）。

【0063】燃料電池スタック4は、図2に示したように隣り合う燃料電池40どうしで同一プレート41, 42を共用するようにして複数の燃料電池40が直列的に並べられた状態で、エンドプレート4A, 4Bの間にボルト締めにより挟持された格好とされており、一方のエンドプレート4A側と他方のエンドプレート4B側とが4つの連通孔4a～4dを介して連通している。

【0064】各燃料電池40は、図3および図4に示したように第1のプレート41および第2のプレート42と、これらのプレート41, 42の間に介在するイオン交換膜43と、このイオン交換膜43と第1のプレート41または第2のプレート42との間に介在する負極集電体44または正極集電体45と、負極集電体44または正極集電体45の周りを囲むようにして配置された第1ガスケット47または第2ガスケット48と、負極集電体44や第1ガスケット47とイオン交換膜43との間に挟まれる給水層46と、を備えて大略構成されている。

【0065】各プレート41, 42は、全体がたとえばステンレス鋼などの導体によって形成されており、四隅のそれには、厚み方向に貫通する第1から第4貫通孔41a～41d, 42a～42dが設けられている。そして、各プレート41, 42における一面41A, 42A側には、図3における左右方向に延びる複数の個別溝部41e, 42eが上下方向に並べぶようにして形成されており、各個別溝部41e, 42eの一端部どうしが上下方向に延びる第1共通溝部41f, 42fによって、他端部どうしが第2共通溝部41g, 42gによってそれぞれ繋げられている。第1共通溝部41f, 42fは、対角配置された第1および第2貫通孔41a, 41b, 42a, 42bのうちの第1貫通孔41a, 42aに連通しており、第2共通溝部41g, 42gは、第2貫通孔41b, 42bに連通している。各プレート41, 42の他面41B, 42Bにも、図面上に明確に表れていないが、一面41A, 42A側と同様な個別溝部および共通溝部がそれぞれ形成されており、各共通溝部が第3貫通孔41c, 42cまたは第4貫通孔41d, 42dに連通している。つまり、各プレート41, 42の一面41A, 42A側に酸素ガス用の流路が形成され、他面側41B, 42B側に水素ガス用の流路が形成されて、隣り合う燃料電池40どうしで一枚のプレート41, 42を共用できるようになされている。なお、各燃料電池40がスタック4を構成する状態では、第1および第2のプレート41, 42の第1貫通孔41a, 42aどうしが同軸上に位置し、同様に、第2ないし第4貫通孔41b～41d, 42b～42dも同軸上に位置するようにして第1および第2のプレート41, 42が配置される。

【0066】イオン交換膜43は、その四隅に第1および第2のプレート41, 42の第1から第4貫通孔41a～41d, 42a～42dに対応して4つの貫通孔43a～43dが形成されている。そして、イオン交換膜43の両面のそれぞ

れには、負極触媒部43Aおよび正極触媒部43Bが形成されている。

【0067】負極触媒部43Aは、たとえば炭素粒の表面にプラチナを担持させた触媒粒で構成された多孔質層とされており、水素分子や水素イオンが通過可能とされている。この負極触媒部43Aでは、供給された水素ガスが、水素イオンと電子に解離される。一方、正極触媒部43Bは、たとえば炭素粒の表面にプラチナとロジウムとを共存担持させた触媒粒で構成された多孔質層とされており、酸素分子が通過可能とされている。この正極触媒部43Bでは、酸素ガスが、水素イオンおよび電子と反応して水が生成される。

【0068】イオン交換膜43は、プロトン導電性を示すものであり、水素イオンを選択的に通過させるものである。このイオン交換膜43としては、たとえばポリスチレン系の陽イオン交換膜であるペルフルオロスルホン酸ポリマーが採用されるが、このポリマーは、水により潤湿した場合に導電性を示し、水素イオンが水和した状態で通過する。

【0069】負極集電体44は、負極触媒部43Aにおいて水素ガスから解離した電子を集めて燃料電池40の外部に取り出せるようにし、また供給された水素ガスが負極触媒部43Aに達するように水素ガスを通過させるものである必要があることから、たとえば炭素系素材によって多孔質体として形成される。正極集電体45は、外部から電子を受け取って、この電子を正極触媒部43Bに供給できるようにし、また供給された酸素ガスが正極触媒部43Bに達するように酸素ガスを通過させる必要があることから、負極集電体44と同様に、たとえば炭素系素材によって多孔質体として形成される。

【0070】第1および第2ガスケット47, 48は、イオン交換膜43と第1または第2のプレート41, 42との間の封止状態、ひいては隣り合うプレート41, 42どうしの封止状態を高めるためのものである。全体形状としては、その中央部には集電体44(45)の面積よりも大きな開口47A, 48Aが設けられた矩形枠状とされており、枠隅には、第1および第2のプレート41, 42の各貫通孔41a～41d, 42a～42dに対応した部位に貫通孔47a～47d, 48a～48dが設けられている。そして、その厚みは、集電体44, 45と同程度またはそれよりも若干大きくなされている。したがって、燃料電池40を構成した状態では、ガスケット47, 48が集電体44, 45の周りを囲んでおり、集電体44, 45の周りには、当該集電体44, 45とガスケット47, 48の間に隙間が形成される。

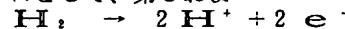
【0071】本実施形態では、この隙間に、たとえばポリアクリル酸架橋体などの吸水性高分子ゲル49A, 49Bが充填されている。この高分子ゲル49A, 49Bは、水分量が大きくなれば膨張し、小さくなれば収縮するものである。したがって、正極触媒部43Bにおいて水が生成された場合には、その水の一部は吸水性高分子ゲル49A,

49Bにおいて吸収される。このため、各集電体44, 45の周りにおいて、集電体44, 45とガスケット47, 48との間に形成される隙間が、膨張した高分子ゲル49A, 49Bによって充たされることとなる。つまり、水を吸収して膨張したイオン交換膜43が当該隙間に入り込んでしまうともなく、これによりイオン交換膜43にしづがるなどして強度が低下してしまうことが適切に回避され、また正極触媒部43Bにおいて生じた水が高分子ゲル49A, 49Bによってある程度は除去される。

【0072】給水層46は、たとえば一対の透湿性防水シート46Bの間に吸水材46Aを介在させた構成とされており、その四隅には、各プレート41, 42の貫通孔41a～41d, 42a～42dに対応する部位に、貫通孔46a～46dが形成されている。また、負極触媒部43Aで生じた電子を負極集電体44へ送るのを妨げないように、カーボン製や金属製などの導体パス46eが複数形成されている。この給水層46は、これを通過する水素ガスを加湿し、また負極触媒部43Aで生じた水素イオンを水和する役割を果たすものである。したがって、燃料電池40内に給水層46を設ければ、燃料電池40の外部において水素ガスを加湿してから水素ガスを燃料電池40内に送り込む必要はないといった利点が得られる。

【0073】以上の構成とされた燃料電池40では、イオン交換膜43、給水層46および各ガスケット47, 48の各部材には、各プレート41, 42に形成された貫通孔41a～41d, 42a～42dに対応して、各々に貫通孔が形成されている。したがって、図4に良く表れているように、燃料電池40の状態では、各部材に設けられた貫通孔どうしが繋がっており、燃料電池スタック4の状態においても、各部材の貫通孔どうしが繋がって、エンドプレート4A, 4Bの外部にまで通じる第1から第4連通孔4a～4dを形成している（図2参照）。これらの連通孔4a～4dのうち、対角に位置する第1および第2連通孔4a, 4bは、各プレート41, 42の一面41A, 42A側に設けられた個別溝部41e, 42eないし共通溝部41f, 42f, 41g, 42gとそれぞれ連通しており（図4参照）、残りの2つの連通孔4c, 4dは、図面上には明確に表れていないが他面41B, 42B側に設けられた個別溝部ないし共通溝部とそれぞれ連通している。

【0074】つまり、燃料電池スタック4の外部から、他方のエンドプレート4B側に入り口として、第3およ



【0078】以上に説明した燃料電池スタック4では、1の燃料電池40の負極集電体44に集められた電子は、隣の燃料電池40の正極集電体45に供給される。その結果、隣の燃料電池40の負極側では、さらに加算された多くの電子を生成できる。このように、燃料電池スタック4内

び第4連通孔4c, 4dのいずれか一方または双方から水素ガスを供給すれば、全てのプレート41, 42の他面41B, 42B側の個別溝部や共通溝部に水素ガスが通じられる。そして、一方のエンドプレート4A側からは、余剰の水素ガスが排出されるが、この水素ガスは、図1に良く表れているように改質装置2のボイラ21の燃料として供給される。また、第1および第2貫通孔4a, 4bのいずれか一方または双方から酸素ガスを供給すれば、全てのプレート41, 42の一面41A, 42A側の個別溝部41e, 42eや共通溝部41f, 41g, 42f, 42gに酸素ガスが通じられる。なお、酸素ガスは、通常、空気の状態で供給される。

【0075】各燃料電池40においては、たとえば第3連通孔4cや第4連通孔4dを通過する水素ガスの一部が第1プレート41の他面41B側に形成された個別溝部や共通溝部に供給され、この水素ガスが負極集電体44および給水層46を通過する。給水層46を通過した水素ガスは、加湿状態とされるとともに負極触媒部43Aで水素イオンと電子に解離される（下記反応式（4））。

【0076】この反応の際に生じた電子は、負極集電体44に集められるが、この電子は第1のプレート41を介して当該第1のプレート41を共用する隣の燃料電池40の正極集電体45に供給される（図2参照）。一方、負極触媒部43Aにおける反応の際に生じた水素イオンは、給水層46からの水分によって水和され（下記反応式（5））、水和物の状態でイオン交換膜43を通過して正極触媒部43Bに移動する。この正極触媒部43Bにはさらに、第2のプレート42を共用する隣の燃料電池40の負極集電体44から電子が供給され、また第3連通孔4cや第4連通孔4dを通過する空気（酸素ガス）の一部が第2プレート42の一面42A側に形成された共通溝部42g, 42f、個別溝部42eおよび正極集電体45を介して供給される。このよ

うにして酸素ガス、電子および水素イオンが供給された正極触媒部43Bでは、これらが反応して水が生成する（下記反応式（6））。なお、このとき生じた水の一部は、イオン交換膜43を逆拡散して、給水層46や吸水性高分子ゲル49A, 49Bの他、イオン交換膜43において吸収される。

【0077】

【化2】

50

に電子の流れができ、最下流に位置する燃料電池40の負極集電体44には、最大数の電子が集められる。これらが外部回路を経由して、電子の流れ方向の最上流に位置する燃料電池40の正極集電体45に供給されるが、この過程において、外部回路で電気エネルギーとして取り出され

る。なお、電子の流れ方向の下流側に位置する燃料電池40ほど、各触媒部43A、43Bの触媒量を多くしても良く、また最下流の燃料電池40における触媒部43A、43Bの触媒量のみを多くしてもよい。

【0079】

【実施例】以下、比較例とともに実施例について説明する。

【0080】

【実施例1】表面に酸化チタンの光触媒層が形成された触媒シート（日立金属（株）製；商品名「Ti OMET（TM-A1）」）を収容した透明容器（容積5dm³）内に、表1に示す組成の評価ガスを充填した。この容器に対して、光触媒層との距離が150mmとなる部位から、当該光触媒層に波長が100nmの光が照射されるようにしてブラックライト（ナショナル（株）製；商品名「FL20S・SL-B」、出力20W、1本）により、継続的に光を照射した。そして、透明容器からガスを適宜サンプリングし、このガス中の一酸化炭素ガス濃度および二酸化炭素ガス濃度を検知管方式により測定することにより、これらのガス濃度の経時的な変化を考察した。その結果を表3に示した。

【0081】

【表1】

| 成分 | CO | CO ₂ | 空気 |
|----------|-----|-----------------|----|
| 濃度 [ppm] | 800 | 10 | 残部 |

【0082】

【実施例2】本実施例においては、光触媒層に照射する光の波長を150nmとした以外は、実施例1と同様の条件とし、透明容器内の一酸化炭素ガス濃度および二酸化炭素ガス濃度を検知管方式により測定し、これらのガス濃度の経時的な変化を考察した。その結果を表3に示した。

【0083】

【実施例3】本実施例においては、光触媒層に照射する光の波長を200nmとした以外は、実施例1と同様の条件とし、透明容器内の一酸化炭素ガス濃度および二酸化炭素ガス濃度を検知管方式により測定し、これらのガス濃度の経時的な変化を考察した。その結果を表3に示した。

【0084】

【実施例4】本実施例では、評価ガスの組成を表2に示す組成にするとともに、光触媒層に照射する光の波長を100nmとし、透明容器内のガスを適宜サンプリングして一酸化炭素ガス濃度、二酸化炭素ガス濃度および水素ガス濃度を検知管方式により測定した。そして、これらの各ガス濃度の経時的な変化を考察した。その結果を表4に示した。

【0085】

【表2】

| 成分 | CO | CO ₂ | H ₂ | 空気 |
|----|-----------|-----------------|----------------|----|
| 濃度 | 100 [ppm] | 50 [ppm] | 20 [mol%] | 残部 |

【0086】

【比較例1】本実施例においては、光触媒層に照射する光の波長を300nmとした以外は、実施例1と同様の条件とし、透明容器内の一酸化炭素ガス濃度および二酸化炭素ガス濃度を検知管方式により測定し、これらのガス濃度の経時的な変化を考察した。その結果を表3に示した。

【0087】

【比較例2】本比較例においては、透明容器内に触媒シートを収容せずに、容器内ガスの各ガスの濃度の経時的な変化を考察した。評価ガスの組成は、実施例1と同様に

表1に示す組成とし、サンプリングしたガスの濃度の検出には、実施例1と同様に検知管方式を採用した。その結果を表3に示した。

【0088】

【比較例3】本比較例においては、光触媒層に照射すべき光の波長を50nmとした以外は実施例4と同様とし、透明容器内の一酸化炭素ガス濃度、二酸化炭素ガス濃度および水素ガス濃度の経時的な変化を考察した。その結果を表4に示した。

【0089】

【表3】

| 時間 [hr] | | 0 | 0.5 | 1.0 | 3.0 | 7.0 | 24.0 |
|-----------------|-----------------------|-----|-----|-----|------|------|------|
| 実施例 1 100 nm | CO [ppm] | 800 | 700 | 600 | 340 | 100 | 0 |
| | CO ₂ [ppm] | 10 | 600 | 800 | 1000 | 1000 | 1000 |
| 実施例 2 150 nm | CO [ppm] | 800 | 700 | 700 | 600 | 400 | 300 |
| | CO ₂ [ppm] | 10 | 600 | 700 | 900 | 1000 | 1100 |
| 実施例 3 200 nm | CO [ppm] | 800 | 800 | 800 | 800 | 780 | 700 |
| | CO ₂ [ppm] | 10 | 10 | 10 | 200 | 500 | 800 |
| 比較例 1 300 nm | CO [ppm] | 800 | 800 | 800 | 800 | 800 | 800 |
| | CO ₂ [ppm] | 10 | 10 | 10 | — | 50 | 50 |
| 比較例 2 触媒無 | CO [ppm] | 800 | 800 | 800 | 800 | 800 | 800 |
| | CO ₂ [ppm] | 10 | — | — | 10 | 10 | 10 |

【0090】

【表4】

| 時間 [hr] | | 0 | 3.0 | 24.0 |
|-----------------|-----------------------|-----|-----|------|
| 実施例 4 100 nm | CO [ppm] | 100 | 100 | 50 |
| | H ₂ [mol%] | 20 | 20 | 19 |
| | CO ₂ [ppm] | 50 | 100 | 200 |
| 比較例 3 50 nm | CO [ppm] | 100 | 100 | 100 |
| | H ₂ [mol%] | 20 | 15 | 10 |
| | CO ₂ [ppm] | 50 | 50 | 50 |

【0091】

【発明の効果】以上に説明したように、本発明の一酸化炭素の変成方法では、光触媒に照射する光の波長範囲を200 nm以下、とくに100～150 nmとすることにより、一酸化炭素と水素ガスとを含む混合ガスから、水素ガスをあまり酸化することなく、一酸化炭素を選択的に酸化（変成）することができる。

【0092】また、この変成方法を採用した燃料電池システムは、改質装置において生じた一酸化炭素を効率良く、しかも低温（低エネルギー）で除去できるため、燃料

電池システム全体としてのエネルギー効率が著しく改善される。

【図面の簡単な説明】

【図1】燃料電池システムを表すブロック図である。

【図2】燃料電池が直列的に集合した燃料電池スタックの全体斜視図である。

【図3】燃料電池の分解斜視図である。

30 【図4】燃料電池を構成するプレートの対角線に沿つて、当該燃料電池を断面したときの断面図である。

【符号の説明】

1 燃料電池システム

2 改質装置

3 変成装置

4 燃料電池スタック

40 4 燃料電池

4 1 第1のプレート

4 2 第2のプレート

4 3 イオン交換膜

4 3 A 負極触媒部

4 3 B 正極触媒部

4 4 負極集電体

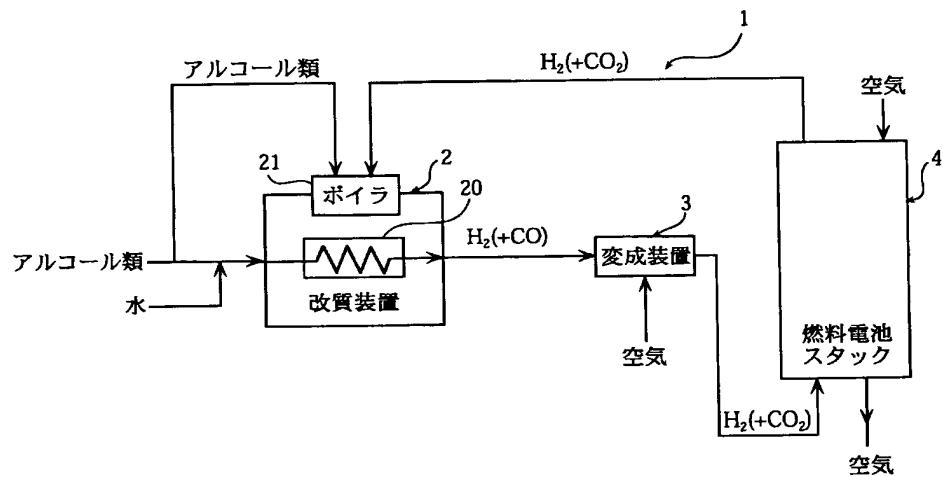
4 5 正極集電体

4 6 給水層

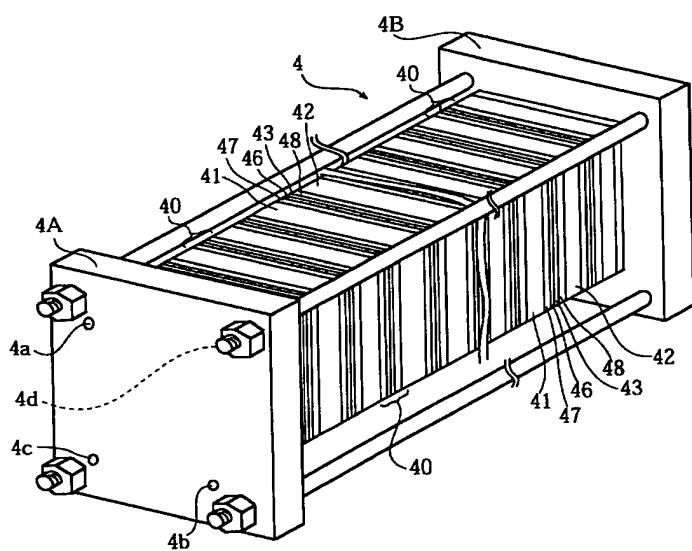
4 7 第1ガスケット

4 8 第2ガスケット

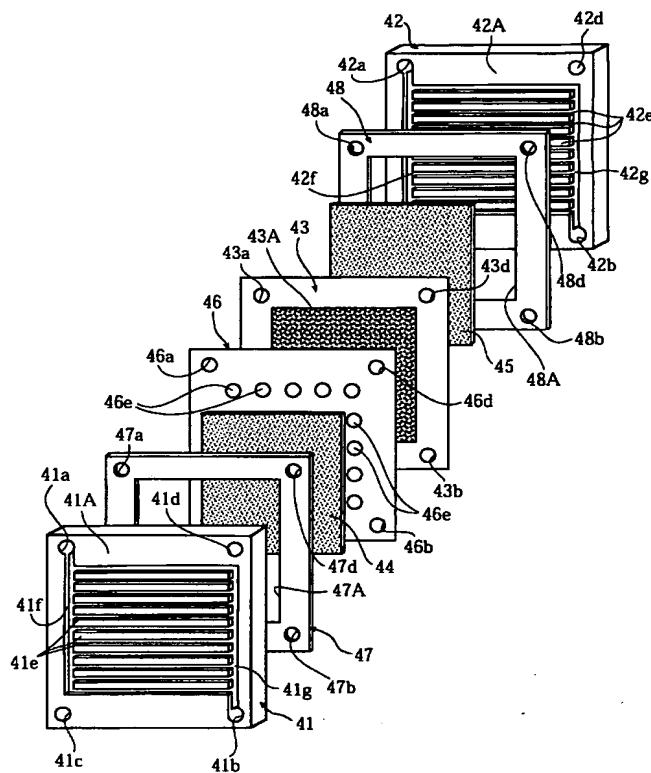
【図1】



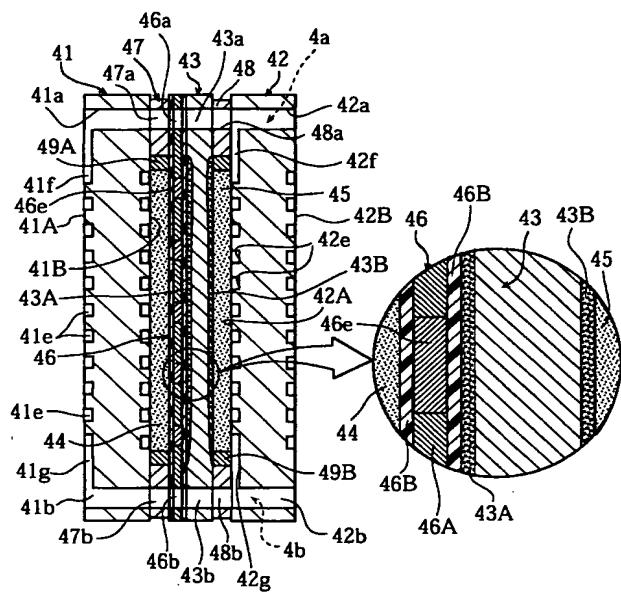
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51) Int.C1.7

識別記号

F I

テーマコード (参考)

H 01M 8/10

H 01M 8/10

// C 01B 31/20

C 01B 31/20

A

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)